

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

日 本 国 特 許 庁  
PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT



別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application:

2000年 3月17日

出 願 番 号  
Application Number:

特願2000-076614

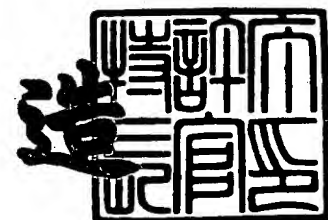
出 願 人  
Applicant(s):

ソニー株式会社

2000年12月 8日

特許庁長官  
Commissioner,  
Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2000-3102901

【書類名】 特許願

【整理番号】 9900688002

【提出日】 平成12年 3月17日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 10/40

【発明者】

【住所又は居所】 福島県郡山市日和田町高倉字下杉下1番地の1 株式会社  
ソニー・エナジー・テック内

【氏名】 吉野 孝伸

【発明者】

【住所又は居所】 東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニー株式会社  
内

【氏名】 杉山 毅

【特許出願人】

【識別番号】 000002185

【氏名又は名称】 ソニー株式会社

【代表者】 出井 伸之

【代理人】

【識別番号】 100098785

【弁理士】

【氏名又は名称】 藤島 洋一郎

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 019482

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9708092

特 2000-076614

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 電池の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 正極および負極と共に電解質層を備えた電池の製造方法であって、

正極または負極の少なくとも一方の一面側に端子を取り付ける工程と、

前記端子が取り付けられた正極または負極の一面側の端子が取り付けられた領域を除く他の領域に電解質層を形成する工程とを含むことを特徴とする電池の製造方法。

【請求項 2】 前記端子を取り付ける工程では正極体または負極体の少なくとも一方の一面側に複数の端子を間欠的に取り付け、前記電解質層を形成する工程では複数の電解質層を間欠的に形成し、更に、前記複数の電解質層が形成された正極体または負極体を端子と電解質層との間において切断する工程を含むことを特徴とする請求項 1 記載の電池の製造方法。

【請求項 3】 前記複数の端子を取り付ける工程に先立ち、集電体の少なくとも一面側に反応層を間欠的に形成することにより前記正極体または負極体を作製する工程を更に含み、前記正極体または負極体のうち前記集電体が露出している領域に端子を取り付けることを特徴とする請求項 2 記載の電池の製造方法。

【請求項 4】 加圧手段を有する吐出機を用いて、前記吐出機から前記正極または負極の側に電解質を押し出して電解質層を形成することを特徴とする請求項 1 記載の電池の製造方法。

【請求項 5】 前記端子が取り付けられた正極または負極を搬送させつつ電解質層を形成すると共に、前記正極または負極の端子が取り付けられている領域が前記吐出機の吐出口と対向する位置に到達したときに、前記吐出口を退避させることを特徴とする請求項 4 記載の電池の製造方法。

【請求項 6】 前記電解質として、電解質塩と高分子化合物とを含む電解質を用いることを特徴とする請求項 1 記載の電池の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

## 【発明の属する技術分野】

本発明は、電極上に電解質を塗設して電解質層を形成する電池の製造方法に関する。

## 【0002】

## 【従来の技術】

近年、携帯型の電子機器が次々と開発されており、その電源として電池が重要な位置を占めるようになってきている。携帯型電子機器には小型かつ軽量であることが要求されているので、それに伴い電池に対しても、機器内の収納スペースに應じるために小型であり、また機器の重量を極力増やさないように軽量であることが求められている。

## 【0003】

このような要求に応える電池としては、これまで二次電池の主流であった鉛蓄電池やニッケル・カドミウム電池に代わり、これらの電池よりもエネルギー密度および出力密度が大きなりチウム二次電池あるいはリチウムイオン二次電池が注目されている。

## 【0004】

従来、これらのリチウム二次電池あるいはリチウムイオン二次電池では、イオン伝導を司る物質として非水溶媒にリチウム塩を溶解させた液状の電解質（以下、電解液という。）が用いられてきた。そのため、液漏れを防止するために外装を金属製の容器により構成し、電池内部の気密性を厳重に確保する必要があった。しかし、外装に金属製の容器を用いると、薄くて大面積のシート型電池、薄くて小面積のカード型電池あるいは柔軟でより自由度の高い形状の電池などを作製することが極めて困難であった。

## 【0005】

そこで、電解液に代えて、リチウム塩を含有する電解液を高分子化合物に保持させたゲル状の電解質、イオン伝導性を有する高分子化合物にリチウム塩を分散させた固体状の電解質あるいは固体状の無機伝導体にリチウム塩を保持させた電解質を用いた二次電池などが提案されている。これらの電池では、液漏れの問題がないので外装の金属製容器が不要となり、ラミネートフィルムなどを外装部材

としてより一層の小型化、軽量化および薄型化を図ることができ、形状の自由度が高いものを実現することができる。

#### 【0006】

ゲル状の電解質などを用いる場合には、例えば以下に述べる方法により電解質層が形成される。すなわち、まず、図8（A），（B）に示したように、帯状電極集電体125aに間欠的に複数の電極反応層126を形成して帯状電極体121aを作製し、この帯状電極体121aを電解質を貯えたタンク（図示せず）内に通す。次いで、帯状電極体121aをタンクから引き上げて、その両面に付着している電解質を一對のへら（ドクターナイフ）で擦り切ることにより帯状電極体121aの両面に所定の厚さの電解質層123を形成し、電解質を乾燥させて電解質層123が形成された帯状電極体121aを隔離紙と共に巻き取る。そののち、電極反応層126間で切断して複数のものに分離する。なお、帯状電極体121aを隔離紙と共に巻き取るのは、電解質中の溶媒が蒸発したり、電解質層123が水分を吸収することを防止するためである。ちなみに、図8（B）は図8（A）のVIIIB-VIIIB線に沿った断面構造に対応するものである。

#### 【0007】

##### 【発明が解決しようとする課題】

上述した方法では、帯状電極体121aをタンク内に浸漬させて電解質層123を形成するようにしているので、電極反応層126が形成されていない領域においても、帯状電極集電体125a上に直接電解質が付着する。しかしながら、この領域には、電極集電体と外部端子とを接続するための電極端子を取り付ける必要があり、図9（A），（B）に示したように付着した電解質を剥離し、この電解質剥離領域に電極端子111を取り付けるようにしていた。そのため、生産効率が低下してしまうという問題があった。

#### 【0008】

また、電解質の剥離作業を行う際に、隔離紙を一旦剥がさなければならず、電解質中の溶媒が蒸発してしまい、電池の電圧不良や容量不良が生じてしまうという不具合が生じていた。

#### 【0009】

更に、帯状電極集電体 1 2 5 a の両面に電極合剤層 1 2 6 を形成する場合、帯状電極集電体 1 2 5 a の表面側と裏面側とで電極合剤層 1 2 6 の形成領域が異なると、帯状電極体 1 2 1 a の厚さが場所によって異なってしまう、へらを用いて擦り切る方法では電解質層 1 2 3 の厚さを均一にすることが困難であった。

#### 【 0 0 1 0 】

本発明はかかる問題点に鑑みてなされたもので、その目的は、生産効率を高めることができ、また電池性能の劣化を防止することが可能な電池の製造方法を提供することにある。

#### 【 0 0 1 1 】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明による電池の製造方法は、正極および負極と共に電解質層を備えた電池の製造方法であって、正極または負極の少なくとも一方の一面側に端子を取り付ける工程と、端子が取り付けられた正極または負極の一面側の端子が取り付けられた領域を除く他の領域に電解質層を形成する工程とを含むものである。

#### 【 0 0 1 2 】

本発明による電池の製造方法では、正極または負極の少なくとも一方の一面側に端子が取り付けられ、この端子が取り付けられた正極または負極の一面側に電解質層が形成される。

#### 【 0 0 1 3 】

##### 【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態について、図面を参照して詳細に説明する。

#### 【 0 0 1 4 】

まず、本発明の一実施の形態に係る電池の製造方法によって製造される二次電池の構成について説明する。

#### 【 0 0 1 5 】

図 1 は本発明の一実施の形態に係る電池の製造方法によって製造された二次電池の外観構造を表し、図 2 は図 1 に示した二次電池を分解して表すものである。この二次電池は、外部と電氣的に接続可能な正極端子 1 1 および負極端子 1 2 が取り付けられた巻回電極体 2 0 を外装部材 3 0 により封入したものである。



## 【0016】

図3は、図2に示した巻回電極体20のIII-III線に沿った断面構造を表すものである。巻回電極体20は、正極21と負極22とが例えばゲル状の電解質層23を間にして積層されたものであり、これが多数回巻回されている。正極21と負極22との間には電解質層23を介してセパレータ24が挿入されている。なお、図3では、図面の簡略化のため、1回巻回された巻回電極体20を示している。

## 【0017】

正極21は、例えば、正極集電体層25と、この正極集電体層25の両面に設けられた正極反応層26とを有している。正極集電体層25は長手方向の一方の端部において露出している。負極22は、例えば、負極集電体層27と、この負極集電体層27の両面に設けられた負極反応層28とを有しており、負極集電体層27は長手方向の一方の端部において露出している。

## 【0018】

正極端子11および負極端子12は、外装部材30の内部から外部に向かい例えば同一方向にそれぞれ導出されている。正極端子11の一部は、外装部材30の内部において正極集電体層25の露出部分に接続されている。また、負極端子12の一部は、外装部材30の内部において負極集電体層27の露出部分に接続されている。なお、外装部材30は例えば2枚の矩形状のフィルム30a、30bにより構成されており、正極端子11および負極端子12とフィルム30a、30bとは、例えば密着性向上用のフィルム31を介して、外気の侵入が防止されるように十分に密着している。

## 【0019】

次に、図4～図7を参照して、この二次電池の製造方法について説明する。なお、ここでは複数の電池を製造する場合について説明する。ちなみに、図5は図4のV-V線に沿った断面構造に対応するものである。

## 【0020】

まず、図4および図5に示したように、例えば、帯状正極集電体25aに一定の間隔をおいて複数の正極反応層26が連続して形成された電極体としての帯状

正極体 21a を作製する。なお、この帯状正極体 21a は、個々に分離すると上述した正極 21（図 3 参照）となるものである。帯状正極体 21a の作製は、例えば、正極活物質と、カーボンプラックあるいはグラファイトなどの導電剤と、ポリフッ化ビニリデンなどの結着剤とを含有した正極合剤をジメチルホルムアルデヒドあるいは N-メチルピロリドンなどの溶剤に分散して正極合剤スラリーとしたのち、この正極合剤スラリーをアルミニウム（Al）箔、ニッケル（Ni）箔あるいはステンレス箔などの金属箔（厚さは例えば  $15\mu\text{m}$ ）よりなる帯状正極集電体 25a の表面側および裏面側に間欠的に塗布し（厚さは例えば  $50\mu\text{m}$ ）乾燥させ、圧縮成型することにより行う。

#### 【0021】

その際、正極活物質としては、例えば、金属酸化物、金属硫化物あるいは特定の高分子材料のうちのいずれか 1 種または 2 種以上を用いることが好ましい。正極活物質は、電池の使用目的に応じて適宜に選択可能であるが、エネルギー密度を高くするには、 $\text{Li}_x\text{MO}_2$ （但し、 $x$  の値は電池の充放電状態によって異なり、通常  $0.05 \leq x \leq 1.12$  である。）を主体とするリチウム（Li）複合酸化物とすることが好ましい。この組成式において、M は 1 種類以上の遷移金属が好ましく、コバルト（Co）、ニッケルおよびマンガン（Mn）のうちの少なくとも 1 種がより好ましい。このようなりチウム複合酸化物の具体例としては、 $\text{LiNi}_y\text{Co}_{1-y}\text{O}_2$ （但し、 $0 \leq y \leq 1$ ）あるいは  $\text{LiMn}_2\text{O}_4$  が挙げられる。

#### 【0022】

帯状正極体 21a を作製したのち、図 6（A）にも示したように、例えば、アルミニウム、ニッケルあるいはステンレスなどの金属材料（厚さは例えば  $70\mu\text{m}$ ）よりなる正極端子 11 を、接着シート（例えば、シーラント）41（図 5 参照）を用いて帯状正極集電体 25a の表面側の集電体露出域にそれぞれ取り付ける。次いで、接着剤 41 を覆うように例えば絶縁材料よりなるテープ 42（図 5 参照）を貼る。なお、このテープ 42 は、正極端子 11 を保護すると共に、正極端子 11 と負極 22 または負極端子 12 との短絡を防ぎ電氣的な絶縁性を確保するためのものである。ちなみに、図 4 および図 6 では、図面の簡略化のため、接

着剤 4 1 およびテープ 4 2 を省略している。

【 0 0 2 3 】

正極端子 1 1 を取り付けたのち、例えば、帯状正極集電体 2 5 a の表面（すなわち、正極端子 1 1 が取り付けられている面）側の各正極反応層 2 6 の露出面に、乾燥雰囲気中において後述する方法により電解質層 2 3 をそれぞれ形成する。なお、帯状正極集電体 2 5 a の裏面側の各正極反応層 2 6 の露出面にもそれぞれ電解質層 2 3 を形成する場合には、例えば、片面ずつ逐次形成する。

【 0 0 2 4 】

図 7 は、ここで用いる塗布装置の構成例を表すものである。この塗布装置は、例えば、電解質 E を吐出する電解質吐出機 5 0 と、帯状電極体（ここでは、帯状正極体 2 1 a）を搬送する巻出口ロール 6 1 および巻取ロール 6 2 とを備えている。

【 0 0 2 5 】

電解質吐出機 5 0 はノズル 5 1 を有している。電解質吐出機 5 0 は、また、ノズル 5 1 を昇降させる昇降機構 5 8 を有している。昇降機構 5 8 は、例えば、モータ 5 8 a、モータ 5 8 a の一端に取り付けられたスクリュー 5 8 b およびスクリュー 5 8 b と螺合している昇降キャリア 5 8 c とを含んで構成されており、昇降キャリア 5 8 c にノズル 5 1 が取り付けられている。ノズル 5 1 には電解質 E を充填しておく充填部 5 1 a が設けられている。充填部 5 1 a には供給管 5 2 の一端が連通しており、供給管 5 2 の他端は電解質 E が収容されたタンク 5 3 に連通している。供給管 5 2 の途中には、加圧手段としての供給ポンプ 5 4 が配設されている。ノズル 5 1 の電解質 E が通過する流路 5 1 b の途中には、この流路 5 1 b を開閉可能なシャッタ 5 5 が設けられている。シャッタ 5 5 は図示しない駆動機構によって流路 5 1 b を閉鎖する位置と流路 5 1 b を開放する位置のいずれかの位置に変移可能となっている。なお、ここでは、供給ポンプ 5 4 をノズル 5 1 の外部に備えるようにしたが、ノズル 5 1 に加圧機構として例えばギヤポンプを内蔵するような構成としてもよい。

【 0 0 2 6 】

この電解質吐出機 5 0 は、また、ノズル部 5 1 近傍のノズル 5 1 よりも巻出口

ール61側にセンサ56を備えている。このセンサ56は、搬送中の帯状電極体の所定の位置を検出するものであり、検出信号を制御部57に送るようになっている。制御部57では、この検出信号を受けてノズル51、供給ポンプ54およびシャッタ55を後述のように制御するようになっている。

#### 【0027】

この塗布装置では、帯状電極体2.1aが巻出口ロール61から水平方向に送り出され、図7に矢印Aで示した方向に一定の速度で搬送され、正極反応層26の上に電解質Eが塗布されて、巻取ロール62によって巻き取られるようになっている。

#### 【0028】

本実施の形態において電解質層23を形成する際には、まず、上述した電解質吐出機のタンク53に電解質Eを収容する。電解質Eには、例えば、電解質塩としてのリチウム塩と、このリチウム塩を溶解する非水溶媒と、高分子化合物とを含むものを用いる。リチウム塩としては、例えば、 $\text{LiPF}_6$ 、 $\text{LiAsF}_6$ 、 $\text{LiBF}_4$ 、 $\text{LiClO}_4$ 、 $\text{LiCF}_3\text{SO}_3$ 、 $\text{Li}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2\text{N}$ あるいは $\text{LiC}_4\text{F}_9\text{SO}_3$ が適当であり、これらのうちのいずれか1種または2種類以上を混合して使用してもよい。

#### 【0029】

非水溶媒としては、例えば、エチレンカーボネート、プロピレンカーボネート、ブチレンカーボネート、 $\gamma$ -ブチラクトン、 $\gamma$ -バレロラクトン、ジエトキシエタン、テトラヒドロフラン、2-メチルテトラヒドロフラン、1,3-ジオキソラン、酢酸メチル、プロピオン酸メチル、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、エチルメチルカーボネート、2,4-ジフルオロアニソール、2,6-ジフルオロアニソールあるいは4-ブロモベラトロールが適当であり、これらのうちのいずれか1種または2種類以上を混合して用いてもよい。なお、外装部材30として後述するラミネートフィルムを用いる場合には、エチレンカーボネート、プロピレンカーボネート、 $\gamma$ -ブチラクトン、2,4-ジフルオロアニソール、2,6-ジフルオロアニソールあるいは4-ブロモベラトロールなどの沸点が150℃以上のものを用いることが好ましい。簡単に気化すると、外

装部材30が膨らみ、外形不良となるからである。

【0030】

高分子化合物としては、ポリフッ化ビニリデン、ポリアクリロニトリル、アクリロニトリルブタジエンゴム、アクリロニトリルブタジエンスチレン樹脂、アクリロニトリル塩化ポリエチレンプロピレンジエンスチレン樹脂、アクリロニトリル塩化ビニル樹脂、アクリロニトリルメタアクリレート樹脂、アクリロニトリルアクリレート樹脂、ポリエチレンオキサイドあるいはポリエーテル変性シロキサンが適当であり、これらのうちの2種以上を混合して使用してもよい。また、ポリフッ化ビニリデンと、ヘキサフルオロプロピレンあるいはテトラフルオロエチレンとの共重合体を用いることもできる。更に、ポリアクリロニトリルと、酢酸ビニル、メタクリル酸メチル、メタクリル酸ブチル、アクリル酸メチル、アクリル酸ブチル、イタコン酸、水素化メチルアクリレート、水素化エチルアクリレート、アクリルアミド、塩化ビニル、フッ化ビニリデンあるいは塩化ビニリデンなどのビニル系モノマとの共重合体を用いることもできる。また、ポリエチレンオキサイドと、ポリプロピレンオキサイド、メタクリル酸メチル、メタクリル酸ブチル、アクリル酸メチルあるいはアクリル酸ブチルとの共重合体を用いることもできる。加えて、フッ化ビニリデンあるいはエーテル変性シロキサンの共重合体を用いることもできる。

【0031】

タンク53に電解質Eを収容したのち、帯状正極体21aの正極反応層26の露出面に電解質層23を形成する。ここでは、例えば、センサ56が帯状正極体21aの集電体露出域Bから反応層露出域Cに変わる境界を検出すると、そのタイミングに基づいて、制御部57の制御の下にそれまでノズル51の流路51bを閉鎖していたシャッタ55が退避し、流路51bが開放されると共に、それまで停止していた供給ポンプ54が例えば0.01MPa～0.3MPa程度の圧力で駆動される。これにより、充填部51aの電解質Eに対して圧力が均一に付与されて、電解質Eがノズル51の吐出口から吐出され、正極反応層26の表面に塗布されて電解質層23が形成される。

【0032】

そののち、例えば、センサ56が反応層露出域Cから集電体露出域Bに変わる境界を検出すると、そのタイミングに基づいて流路51bを開放していたシャッタ55が流路51b内に突出して流路51bが閉鎖されると共に、供給ポンプ54の駆動が停止される。これにより電解質Eの塗布材料溜41からの吐出が停止される。

#### 【0033】

更に、例えば、センサ56が集電体露出域Bから端子露出域Dに変わる境界を検出すると、そのタイミングに基づいて、制御部57の制御の下にモータ58aが駆動してノズル51が例えば帯状電極体と反対側に退避する。よって、帯状正極集電体25aおよび正極反応層26の合計の厚みよりも正極端子11の厚みの方が大きい場合であっても、ノズル51と正極端子11とが接触することなく帯状電極体が引き続き搬送される。続いて、例えば、センサ56が端子露出域Dから集電体露出域Bに変わる境界を検出すると、そのタイミングに基づいて、ノズル51が元の位置に戻る。次に、センサ56が集電体露出域Bから反応層露出域Cに変わる境界を検出すると、上記と同様に正極反応層26上に電解質層23が形成される。以下、同様の動作が繰り返される。

#### 【0034】

電解質Eは、ノズル51から塗出される際、粘度が例えば $0.001\text{ Pa}\cdot\text{s}$ ～ $0.05\text{ Pa}\cdot\text{s}$ 程度であれば流路51bを円滑に通過する。ちなみに、電解質Eの粘度は、例えば、充填部51aの周囲近傍にオイルバス（図示せず）を設け、オイルバスの内部において加熱したオイルを循環させて電解質Eを加熱することにより調整することができる。また、比較的低沸点の非水溶媒を加えて調整することもできる。

#### 【0035】

なお、塗布装置の例えば巻取ロール62の近傍には、塗布した電解質を乾燥させるための図示しない乾燥機が配設されている。形成された電解質層23がこの乾燥機に対応する位置まで搬送されると電解質が乾燥し、その後に帯状電極体21aと共に例えばプロピレンよりなる図示しないプラスチックフィルムにより覆われ、巻取ロール62に巻き取られる。このようにプラスチックフィルムにより

覆うのは、電解質層 23 中の非水溶媒が蒸発したり、電解質層 23 が水分を吸収したりすることを防止するためである。

## 【0036】

一方、上述した方法と同様にして、図 6 (B) に示したように、電極体としての帯状負極体 22a (すなわち、帯状負極集電体 27a 上に負極反応層 28 が間欠的に設けられたもの) の帯状負極集電体 27a が露出している領域に負極端子 12 を取り付け、そののち、負極反応層 28 の例えば露出面全体に電解質層 23 を間欠的に形成する。なお、帯状負極体 22a の作製は、例えば、リチウム金属、リチウム合金 (例えば、リチウムとアルミニウムとの合金) またはリチウムを吸蔵および離脱することが可能な負極材料とポリフッ化ビニリデンなどの結着剤とを均一に混合し、これをジメチルホルムアルデヒドあるいは N-メチルピロリドンなどの溶剤に分散して負極合剤スラリーとしたのち、この負極合剤スラリーを銅 (Cu) 箔などの金属箔よりなる帯状負極集電体 27a に間欠的に塗布し乾燥させ、圧縮成型することにより行う。

## 【0037】

リチウムを吸蔵・離脱可能な負極材料としては、例えば、炭素質材料、ケイ素またはケイ素化合物、金属酸化物あるいは高分子材料のいずれか 1 種または 2 種以上を含むものを用いることができる。なお、炭素質材料としては、例えば、熱分解炭素類、ピッチコークス、ニードルコークスもしくは石油コークスなどのコークス類、グラファイト類、ガラス状炭素類、有機高分子化合物焼成体 (例えば、セルロース、フェノール樹脂またはフラン樹脂を適当な温度で焼成したもの)、炭素繊維あるいは活性炭などが挙げられる。また、ケイ素化合物としては  $Mg_2Si$  などが挙げられ、酸化物としては  $SnO_2$  などが挙げられ、高分子材料としてはポリアセチレン、ポリアニリン、ポリピロールあるいはジスルフィド系のポリマなどが挙げられる。

## 【0038】

正極端子 11 が取り付けられた帯状正極体 21a および負極端子 12 が取り付けられた帯状負極体 22a に複数の電解質層 23 をそれぞれ間欠的に形成したのち、巻取ロール 62 から帯状正極体 21a および帯状負極体 22a をそれぞれ引

き出すと共に、帯状正極体 21a および帯状負極体 22a を覆っているプラスチックフィルムを剥離する。

#### 【0039】

続いて、例えばシャーカット (share cut) することにより、電解質層 23 と正極端子 11 との間 (図 4 および図 5 においては、X-X 線) において帯状正極集電体 25a を切断し、個々に分離する。これにより、正極端子 11 を備え、正極集電体 25 上に正極反応層 26 および電解質層 23 が順次積層された積層体が複数形成される。また、同様に、電解質層 23 と負極端子 12 との間において帯状負極集電体 27a を切断し、個々に分離することにより、負極端子 12 を備え、負極集電体 27 上に負極反応層 28 および電解質層 23 が順次積層された積層体を形成する。そののち、図 2 および図 3 に示したように、各積層体を電解質層 23 同士が向き合うようにセパレータ 24 を介して張り合わせ、巻回して巻回電極体 20 を形成する。なお、セパレータ 24 には、例えばポリプロピレンあるいはポリエチレンなどのポリオレフィン系の材料を主成分とする多孔質膜を用いる。ちなみに、このような多孔質膜を 2 種以上積層したものを用いるようにしてもよい。

#### 【0040】

巻回電極体 20 を形成したのち、例えば、外装部材 30 であるフィルム 30a, 30b を用意し、巻回電極体 20 をフィルム 30a とフィルム 30b との間に挟み込む。なお、各フィルム 30a, 30b の正極端子 11 および負極端子 12 が導出される端部においては、例えば、正極端子 11 および負極端子 12 を挟むようにフィルム 31 を配置し、フィルム 31 を介して外装部材 30 で正極端子 11 および負極端子 12 をそれぞれ挟むようにする。

#### 【0041】

フィルム 30a, 30b としては、例えば、ナイロンフィルム、アルミニウム箔およびポリエチレンフィルムをこの順に張り合わせたラミネートフィルムを用い、ポリエチレンフィルムと巻回電極体 20 とが対向するように配設する。なお、一方のフィルム 30a は、例えば収納する巻回電極体 20 の形状に合わせて、外縁部を残して膨らみを持たせた形状とする。



## 【0042】

巻回電極体20をフィルム30a, 30bで挟んだのち、例えば減圧雰囲気中において外装部材30を巻回電極体20に圧着させると共に、各フィルム30a, 30bの外縁部同士を熱融着などにより密着させる。これにより、図3に示した電池が完成する。

## 【0043】

このようにして製造される二次電池では、充電を行うと、例えば、正極反応層26からリチウムがイオンとなって離脱し、電解質層23およびセパレータ24を介して負極反応層28に吸蔵される。また、放電を行うと、例えば、負極反応層28からリチウムがイオンとなって離脱し、電解質層23およびセパレータ24を介して正極反応層26に吸蔵される。

## 【0044】

このように本実施の形態に係る電池の製造方法によれば、帯状正極体21a（帯状負極体22a）に正極端子11（負極端子12）を取り付け、その後に電解質層23を形成するようにしたので、電解質層23を形成した後の製造工程数を少なくすることができ、電解質中の溶媒が蒸発したり、電解質層23が水分を吸収したりすることを効果的に防止できる。よって、電池の製造歩留りを向上させることができる。また、放電性能に優れ、安定した電圧を示す電池を得ることができる。

## 【0045】

更に、帯状正極集電体25a（帯状負極集電体27a）の上に複数の正極反応層26（負極反応層28）を間欠的に形成し、その上に電解質層23を形成したのち、帯状正極集電体25a（帯状負極集電体27a）を切断するようにしたので、正極端子11（負極端子12）取付域に電解質が付着するおそれがない。よって、従来行っていた電解質の剥離作業が不要となり、生産効率を高めることができる。また、不要な部分に電解質が塗布されることがないので、製造コストを低減することができる。

## 【0046】

更に、供給ポンプ54を用いて電解質Eに対して圧力を均一に付与し、ノズル

51から電解質Eを押し出すようにしたので、所望の量の電解質を吐出させることができる。よって、薄くて幅方向においても長手方向においても厚さが均一である電解質層23を形成することができ、各電池における電解質の含有量を均一にすることができる。また、電極体の搬送中に何らかの異常が発生した場合においても、供給ポンプ54の駆動を停止すれば電解質は吐出されないので、塗布不良を抑制することができると共に、電解質層形成工程において工程管理を容易に行うことができる。

【0047】

【実施例】

次に、本発明の具体的な実施例について、詳細に説明する。

【0048】

実施例1～5として、以下に述べる方法により、それぞれ100個の二次電池を作製した。

【0049】

すなわち、まず、正極活物質としての $\text{LiCoO}_2$  100質量部と、導電剤としてのカーボンブラック5質量部と、バインダとしてのポリフッ化ビニリデン10質量部とを溶媒としてのN-メチルピロリドンに分散して正極合剤スラリーとし、厚さ $15\mu\text{m}$ のアルミニウム箔よりなる帯状正極集電体の両面に間欠的に $50\mu\text{m}$ の厚さ（乾燥後の厚さ）になるように塗布して正極反応層を形成したのち、乾燥させ圧縮成型して帯状正極体を作製した。このとき、帯状正極集電体の両面に100対の正極反応層を形成した。次いで、厚さ $70\mu\text{m}$ のアルミニウム箔よりなる正極端子を帯状正極集電体の表面側の集電体露出域にそれぞれ溶接し、この正極端子を覆うように厚さ $100\mu\text{m}$ の絶縁テープを貼り付けた。

【0050】

続いて、図7に示した塗布装置と同様の装置を用いて、正極集電体両面側の各正極反応層の露出面に電解質層を形成し、電解質を乾燥させ、電解質層が形成された帯状正極体をポリプロピレンフィルムで覆いロール状に巻き取った。そののち、このロール状に巻き取った帯状正極体を乾燥空気雰囲気中の容器の内部において密閉保管した。

## 【0051】

その際、電解質には、エチレンカーボネート、プロピレンカーボネートおよび  $\gamma$ -ブチラクトンを混合した溶媒に、高分子材料としてフッ化ビニリデンとヘキサフルオロプロピレンとの共重合体を溶解させ、更に電解質塩として  $\text{LiPF}_6$  を溶解させたものを用いた。また、電解質吐出機のノズルの吐出口と正極反応層との距離を  $80\text{ }\mu\text{m}$  とし、ノズルの吐出口と正極端子とが対向する際には、ノズルを帯状正極集電体から  $400\text{ }\mu\text{m}$  程度遠ざけるようにした。

## 【0052】

また、リチウムを挿入・離脱可能な負極材料としての黒鉛100質量部と、バインダとしてのポリフッ化ビニリデン15質量部とを溶媒としてのN-メチルピロリドンに分散して負極合剤スラリーとし、厚さ  $15\text{ }\mu\text{m}$  の銅箔よりなる帯状負極集電体の両面に間欠的に  $50\text{ }\mu\text{m}$  の厚さ（乾燥後の厚さ）になるように塗布して負極反応層を形成したのち、乾燥させ圧縮成型して帯状負極体を作製した。このとき、帯状負極集電体の両面に100対の負極反応層を形成した。次いで、厚さ  $70\text{ }\mu\text{m}$  の銅箔よりなる負極端子を帯状負極集電体の表面側の集電体露出域にそれぞれ溶接し、この負極端子を覆うように厚さ  $100\text{ }\mu\text{m}$  の絶縁テープを貼り付けた。

## 【0053】

続いて、帯状正極体と同様にして、電極集電体両面側の各負極反応層の露出面に電解質層を形成し、電解質を乾燥させ、電解質層が形成された帯状負極体をポリプロピレンフィルムで覆いロール状に巻き取った。そののち、このロール状に巻き取った帯状負極体を乾燥空気雰囲気下の容器の内部において密閉保管した。

## 【0054】

端子および電解質層が形成された帯状正極体および帯状負極体をそれぞれ得たのち、帯状正極体および帯状負極体を覆っているプラスチックフィルムを剥離した。次いで、電解質層と正極端子との間において帯状正極集電体を切断し、帯状正極体を100個の正極に分離した。また、電解質層と負極端子との間において帯状負極集電体を切断し、帯状負極体を100個の負極に分離した。

## 【0055】

帯状正極体および帯状負極体をそれぞれ分離したのち、端子および電解質層が形成された正極と負極とをセパレータを介して多数回巻回し、巻回電極体を 1 0 0 個作製した。

【 0 0 5 6 】

そののち、各巻回電極体について、ナイロンフィルム、アルミニウム箔およびポリエチレンフィルムをこの順に張り合わせたラミネートフィルムを 2 枚用意し、巻回電極体を 2 枚のラミネートフィルムの間に挟み込んだ。なお、正極端子および負極端子が導出される端部においては各端子をそれぞれ挟むように密着性向上用のフィルムを配置した。続いて、ラミネートフィルムを巻回電極体に圧着させると共に、各ラミネートフィルムの外縁部同士を熱融着することより、1 0 0 個の二次電池を得た。すなわち、実施例 1 ～ 5 で 1 ロット 1 0 0 個の二次電池を 5 ロット作製した。ちなみに、得られた各電池の外寸は、それぞれ厚さ 3 . 8 m m , 幅 3 5 m m , 高さ 6 2 m m であった。

【 0 0 5 7 】

なお、実施例 1 ～ 5 に対する比較例 1 ～ 5 として、帯状正極体および帯状負極体を電解質を貯えたタンク内にそれぞれ通し、タンクから引き上げたのち、その両面に付着している電解質をドクターナイフで擦り切ることにより電解質層を形成すると共に、正極端子および負極端子の取付域に付着した電解質を剥離して各端子を取り付けたことを除き、他は実施例 1 ～ 5 と同様にして、1 ロット 1 0 0 個の二次電池を 5 ロット作製した。

【 0 0 5 8 】

このようにして得られた実施例および比較例の各二次電池について、充放電を行って放電容量をそれぞれ測定した。その際、充電は 2 5 0 m A の定電流密度で電池電圧が 4 . 2 V に達するまで行ったのち、4 . 2 V の定電圧で充電時間の総計が 4 時間に達するまで行った。一方、放電は 1 0 0 m A の定電流密度で電池電圧が 3 に達するまで行った。各二次電池について、得られた放電容量が 5 0 0 m A h 以上のものを良品として各実施例および比較例毎に良品の割合を調べた。その結果を表 1 に示す。

【 0 0 5 9 】

【表 1】

	良品率 (%)
実施例 1	79
実施例 2	81
実施例 3	86
実施例 4	85
実施例 5	87
比較例 1	67
比較例 2	67
比較例 3	68
比較例 4	74
比較例 5	75

## 【0060】

表 1 から分かるように、比較例 1 ～ 5 の良品率は 6 7 ～ 7 5 % であったの対し、実施例の良品率は 7 9 ～ 8 7 % となっており、実施例 1 ～ 5 の方が比較例 1 ～ 5 よりも良品率（歩留り）が高かった。すなわち、電極体に端子を取り付けた後に電解質層を間欠的に形成し、切断することにより得られる正極および負極を用いて二次電池を形成すれば、優れた放電性能を有する電池を安定して得られることが分かった。

## 【0061】

以上、実施の形態および実施例を挙げて本発明を説明したが、本発明は上記実施の形態および実施例に限定されるものではなく、種々変形可能である。例えば、上記実施の形態および実施例では、複数の電池を同時に製造する場合について具体的に説明したが、本発明は、個別に電池を製造する場合においても適用する

ことができる。

【 0 0 6 2 】

また、上記実施の形態および実施例では、図 7 に示した電解質吐出機 5 0 を用いて電解質層 2 3 を形成する場合について説明したが、必ずしもこのような電解質吐出機を用いる必要はなく、他の手段により電解質層 2 3 を形成するようにしてもよい。

【 0 0 6 3 】

更に、上記実施の形態では、帯状電極集電体に電極端子を取り付ける際、接着剤 4 1 により接着するようにしたが、実施例 1 ～ 5 においても述べたように溶接により取り付けるようにしてもよい。

【 0 0 6 4 】

また、上記実施の形態および実施例では、ゲル状の電解質層 2 3 を形成するようにしたが、イオン伝導性を有する高分子化合物に電解質塩を分散させた固体状の電解質あるいは固体状の無機電解質などよりなる電解質層としてもよい。このような固体状の電解質層は、電極反応層上に流動性のある電解質を塗布したのち、非水溶媒を完全に蒸発させることにより得ることができる。

【 0 0 6 5 】

更に、上記実施の形態では、電極反応層を帯状電極集電体の両面に形成する場合について説明したが、電極反応層を帯状電極集電体の片面のみに形成するようにしてもよい。また、上記実施の形態では、電解質層を帯状電極集電体の片面に形成する場合について説明したが、実施例 1 ～ 5 においても述べたように両面に形成するようにしてもよい。

【 0 0 6 6 】

更に、上記実施の形態および実施例では、巻回電極体 2 0 がラミネートフィルムの内部に封入された構造の電池を例に挙げて説明したが、本発明は、いわゆる円筒型などの他の形状の電池を製造する際にも同様に適用することができる。

【 0 0 6 7 】

また、上記実施の形態および実施例では、電池反応種がリチウムである電池について説明したが、本発明は、電池反応種がナトリウム (Na) あるいはカルシ

ウム（Ca）などの他の種である電池を製造する際にも同様に適用することができる。その場合、電解質塩としてリチウム塩に代えてナトリウム塩あるいはカルシウム塩などを用いると共に、正極活物質には適宜の金属酸化物あるいは金属硫化物などを用いるようにする。

#### 【0068】

加えて、上記実施の形態では、二次電池を製造する場合について説明したが、本発明は、一次電池を製造する際にも適用することができる。

#### 【0069】

##### 【発明の効果】

以上説明したように請求項1ないし請求項6のいずれか1項に記載の電池の製造方法によれば、正極または負極の少なくとも一方の一面側に端子を取り付け、この端子が取り付けられた正極または負極の一面側の端子が取り付けられた領域を除く他の領域に電解質層を形成するようにしたので、電解質層を形成した後の製造工程数を少なくすることができ、電池の製造歩留りを向上させることができる。また、優れた特性を有する電池を得ることができる。更に、電極端子取付域に電解質が付着するおそれがないので、従来行っていた電解質の剥離作業が不要となり、生産効率を高めることができる。

#### 【0070】

特に、請求項4または請求項5に記載の電池の製造方法によれば、加圧手段により電解質を電極体の側に押し出して電解質層を形成するようにしたので、所望の量の電解質を電極体の側に押し出すことができる。よって、電解質層の厚さを均一にすることができ、各電池における電解質の含有量を均一にすることができる。

##### 【図面の簡単な説明】

#### 【図1】

本発明の一実施の形態に係る電池の製造方法を用いて製造された電池の構成を表す斜視図である。

#### 【図2】

図1に示した電池を分解して表す分解斜視図である。

【図 3】

図 2 に示した巻回電極体の I I I - I I I 線に沿った断面図である。

【図 4】

本発明の一実施の形態に係る電池の製造方法を説明するための斜視図である。

【図 5】

図 4 の V - V 線に沿った断面図である。

【図 6】

本発明の一実施の形態に係る電池の製造方法を説明するための平面図である。

【図 7】

本発明の一実施の形態に係る電池の製造方法に用いる塗布装置の概略構成を表す部分断面図である。

【図 8】

(A) は従来の電池の製造方法を説明するための斜視図であり、(B) は (A) の VIIIB - VIIIB 線に沿った断面図である。

【図 9】

(A) は図 8 に続く製造工程を説明するための斜視図であり、(B) は (A) の IXB - IXB 線に沿った断面図である。

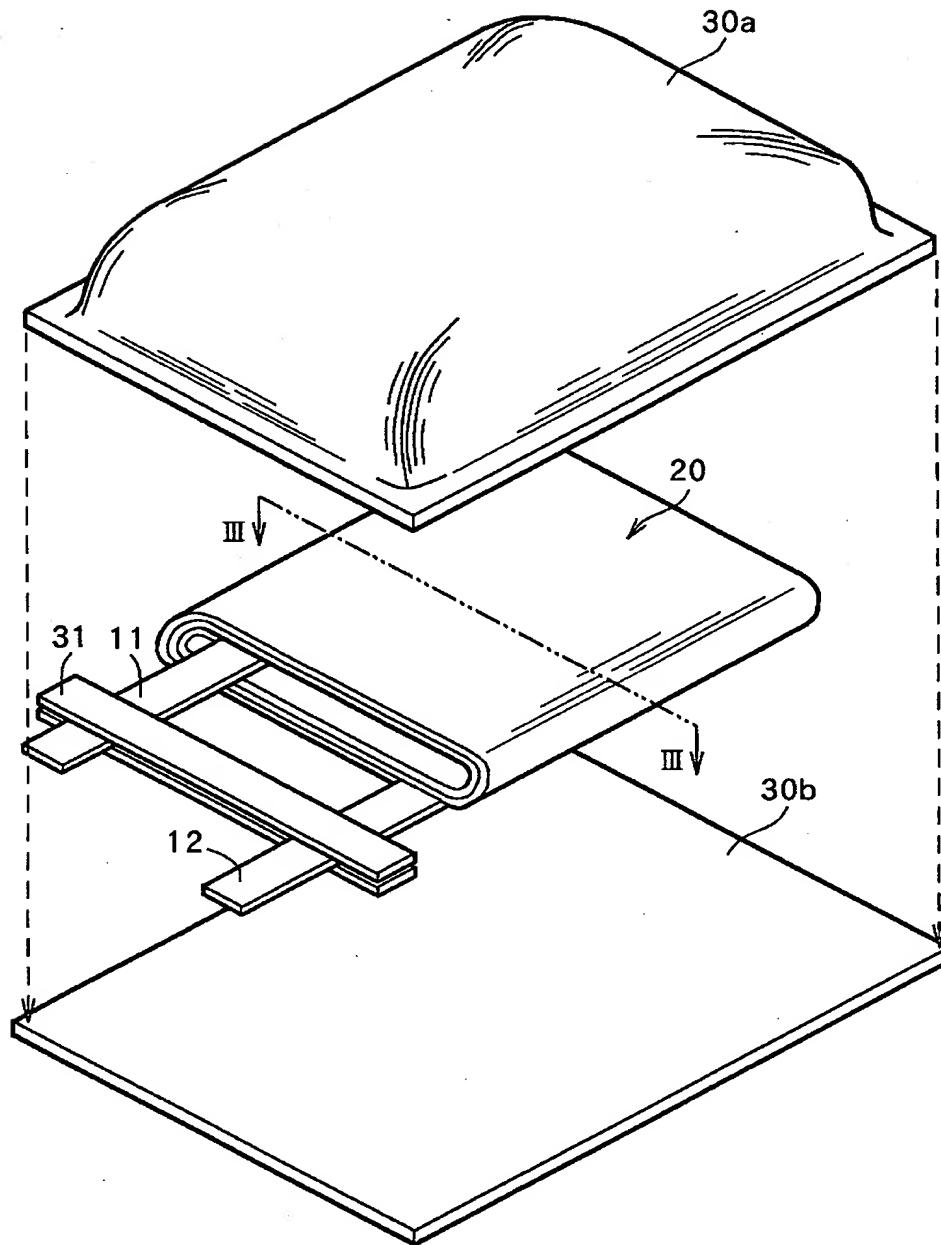
【符号の説明】

1 1 …正極端子、1 2 …負極端子、2 0 …巻回電極体、2 1 …正極、2 1 a …  
 帯状正極体、2 2 …負極、2 2 a …帯状負極体、2 3 …電解質層、2 4 …セパレ  
 ータ、2 5 …正極集電体層、2 5 a …帯状正極集電体、2 6 …正極反応層、2 7  
 …負極集電体層、2 7 a …帯状負極集電体、2 8 …負極反応層、3 0 …外装部材  
 、3 0 a、3 0 b、3 1 …フィルム、4 1 …接着剤、4 2 …テープ、5 0 …電解  
 質吐出機、5 1 …ノズル、5 1 a …充填部、5 1 b …流路、5 2 …供給管、5 3  
 …タンク、5 4 …定量ポンプ、5 5 …シャッタ、5 6 …センサ、5 7 …制御部、  
 5 8 …昇降機構、5 8 a …モータ、5 8 b …スクリュー、5 8 c …昇降キャリア  
 、6 1 …巻出口ロール、6 2 …巻取ロール、E …電解質

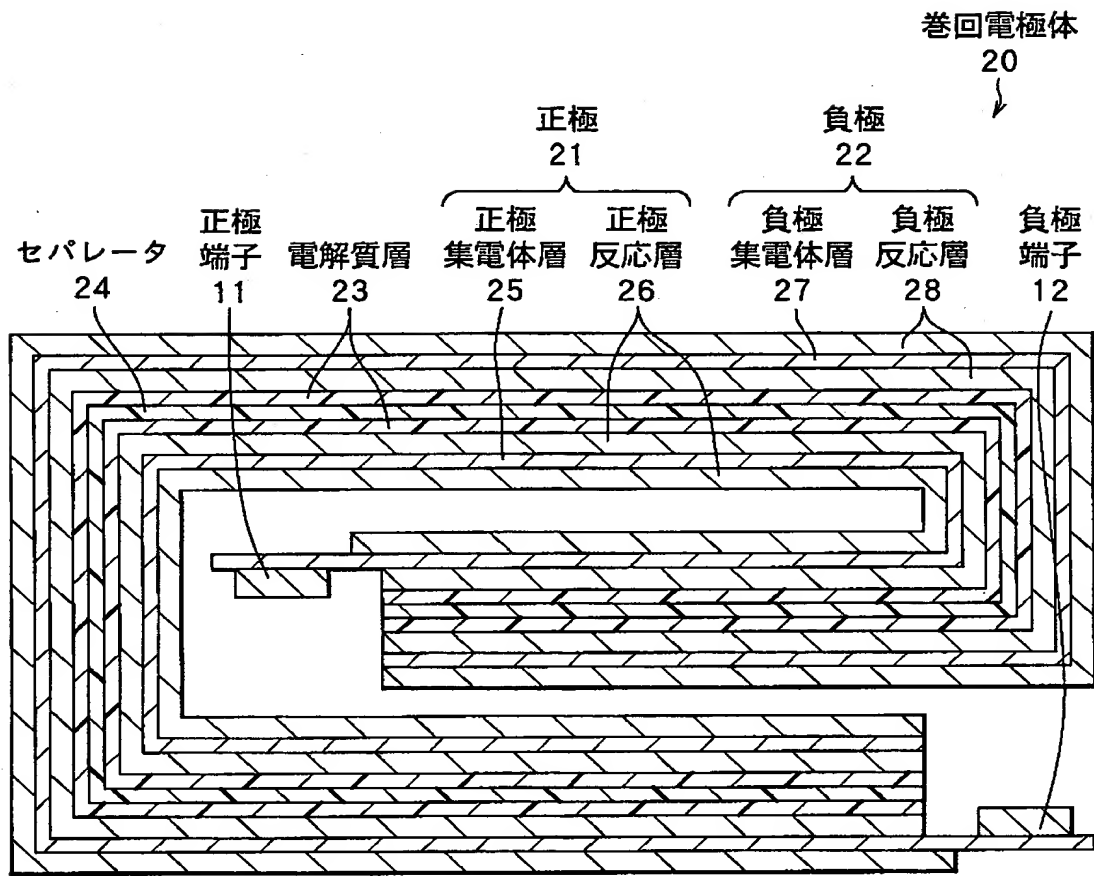




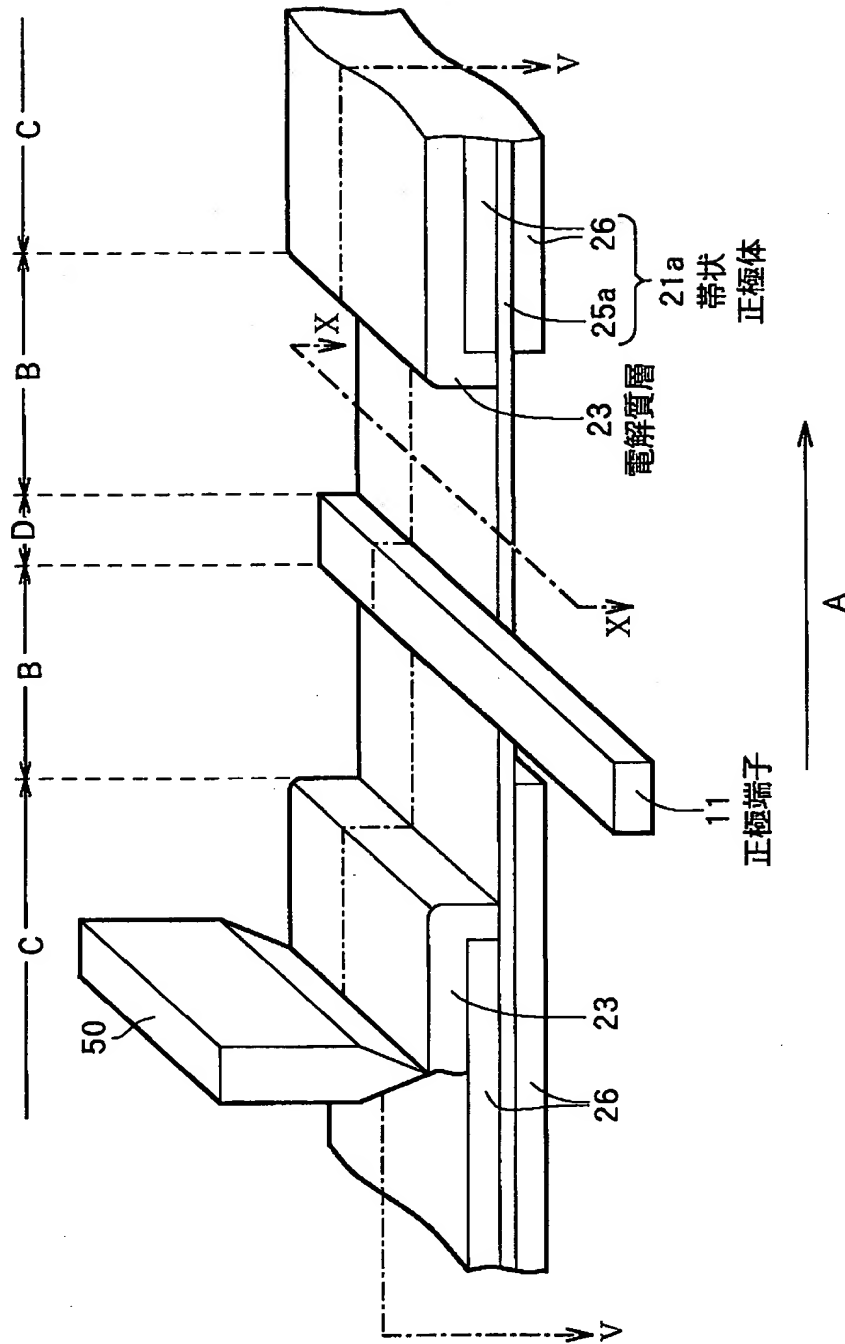
【図 2】



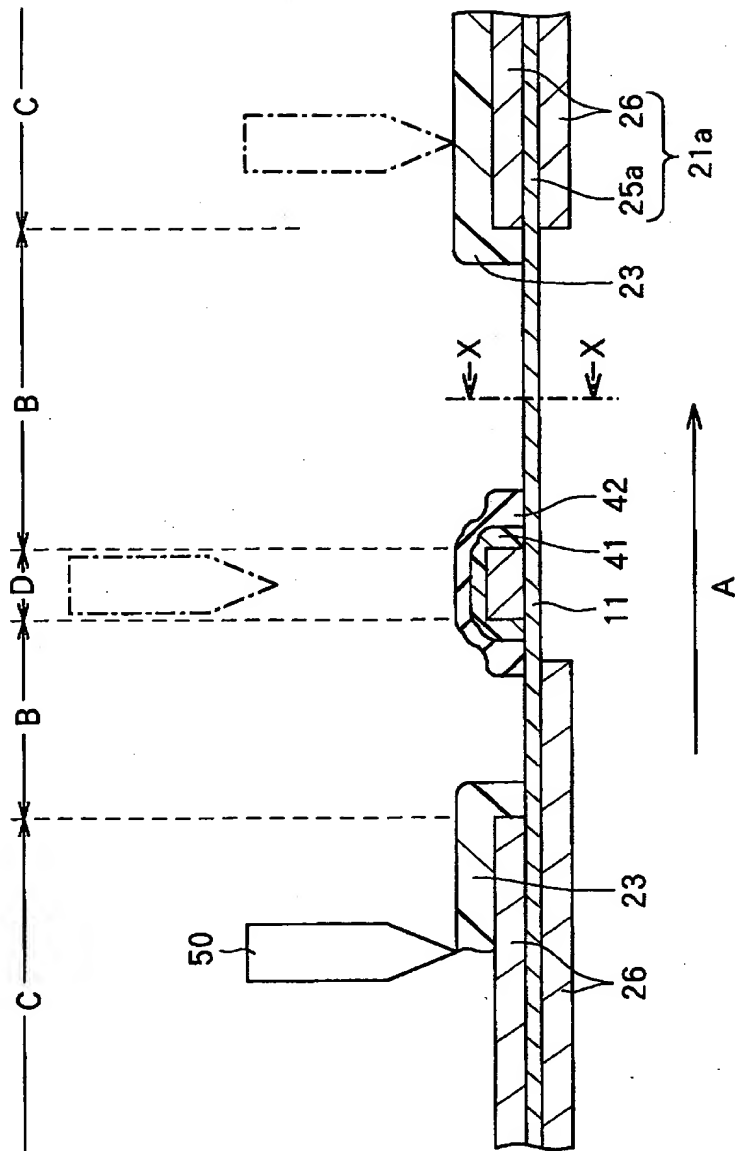
【図 3】



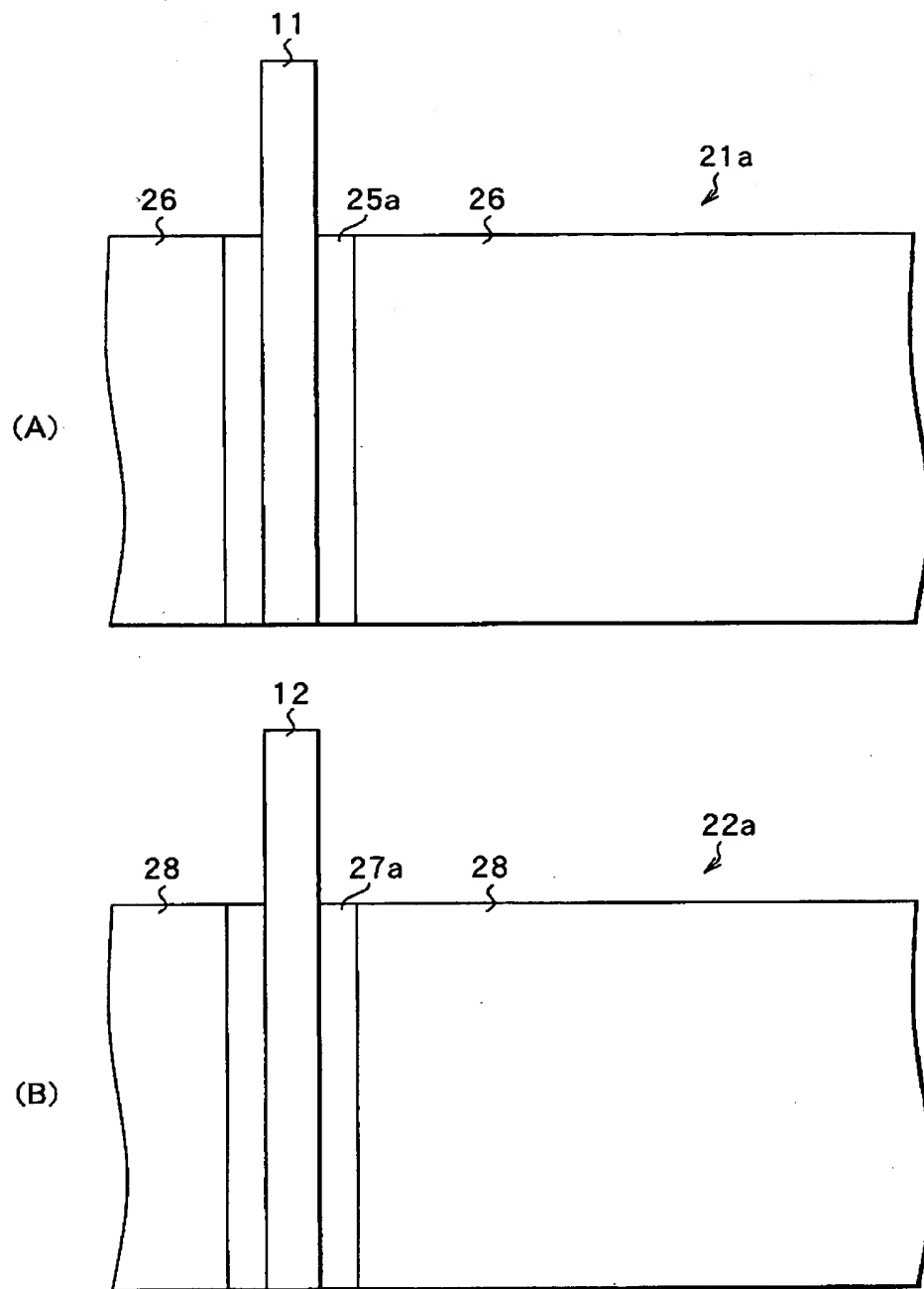
【図 4】



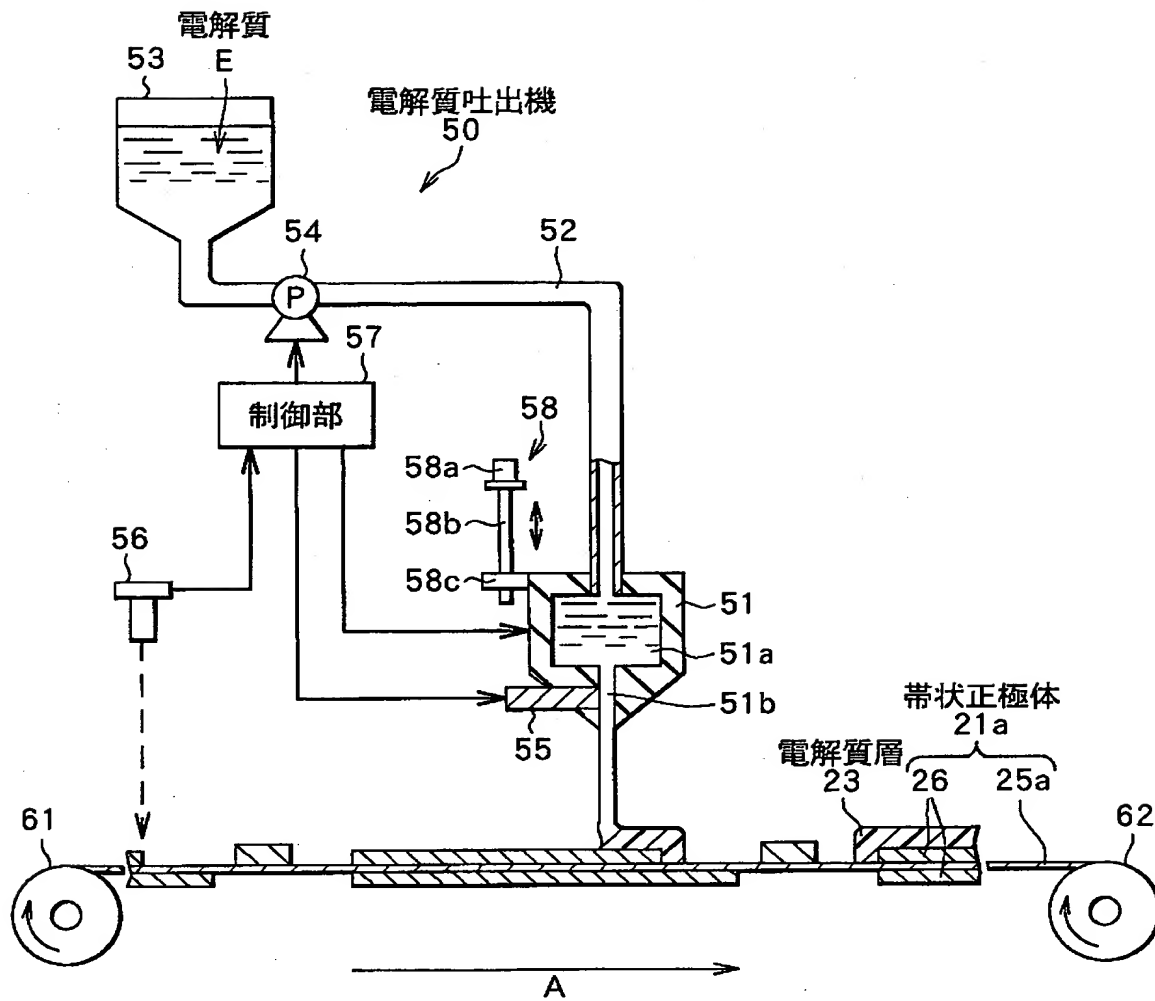
【図 5】



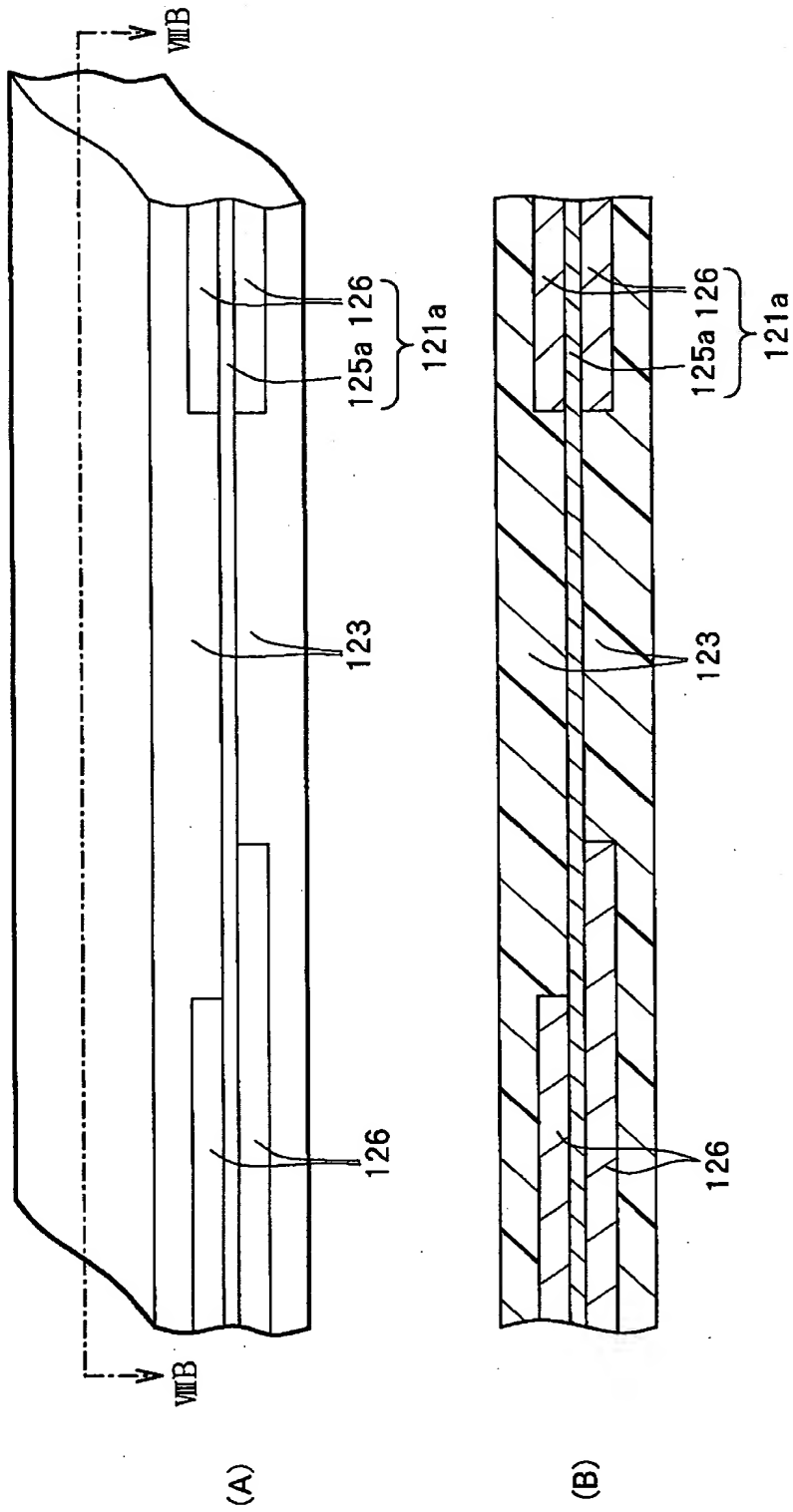
【図 6】



【図 7】

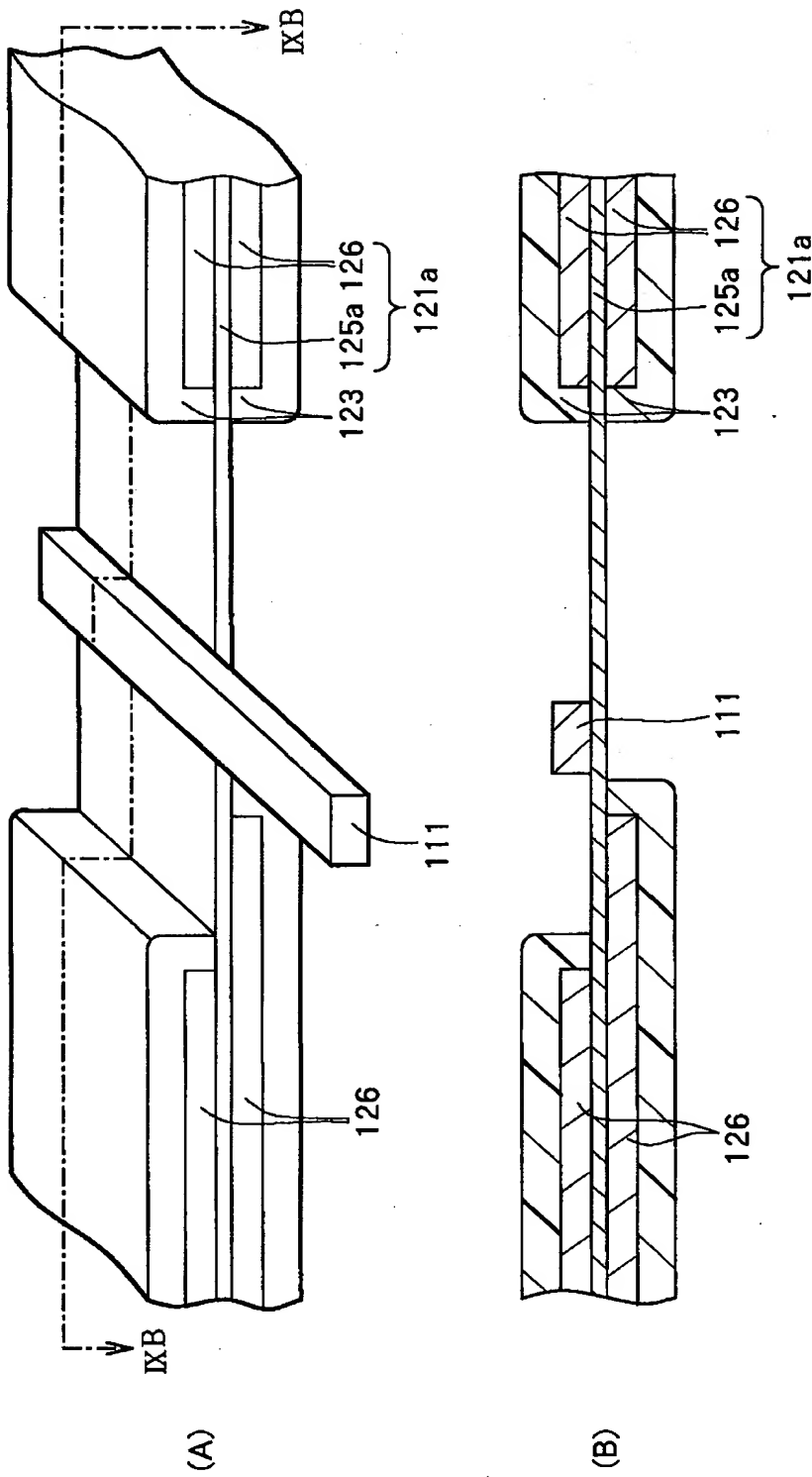


【図 8】





【図 9】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 生産効率を高めることができ、また電池性能の劣化を防止することが可能な電池の製造方法を提供する。

【解決手段】 帯状正極体 2 1 a に正極端子 1 1 を取り付け、その後に電解質層 2 3 を形成する。電解質層 2 3 を形成した後の製造工程数を少なくすることができ、電解質中の溶媒が蒸発したり、電解質層 2 3 が水分を吸収したりすることを効果的に防止できる。よって、電池の製造歩留りを向上させることができる。また、放電性能に優れ、安定した電圧を示す電池を得ることができる。

【選択図】 図 4

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000002185]

1. 変更年月日	1990年 8月30日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都品川区北品川6丁目7番35号
氏 名	ソニー株式会社